

10/523067

Rec'd PCT/PTO 19 JAN 2005

510.1117

IN THE UNITED STATES PATENT & TRADEMARK OFFICE

Re: Application of: Felix BLANK, et al.
Serial No.: To Be Assigned
Filed: Herewith as national phase of International Patent
Application PCT/DE2003/002201, filed July 2, 2003
For: INTERNALLY GAS REGULATED FUEL CELL

Mail Stop: PCT
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

January 19, 2005

LETTER RE: PRIORITY


Sir:

Applicant hereby claims priority of German Application Serial No. DE 102 32 871.4, filed July 19, 2002 through International Patent Application Serial No. PCT/DE2003/02201, filed July 2, 2003.

Respectfully submitted,

DAVIDSON, DAVIDSON & KAPPEL, LLC

By


William C. Gehris, Reg. No. 38,156
(signing for Thomas P. Canty, Reg. No. 44,586)

Davidson, Davidson & Kappel, LLC
485 Seventh Avenue, 14th Floor
New York, New York 10018
(212) 736-1940

BEST AVAILABLE COPY

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



REC'D 15 AUG 2003

WIPO

PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 102 32 871.4

Anmeldetag: 19. Juli 2002

Anmelder/Inhaber: DaimlerChrysler AG, Stuttgart/DE

Bezeichnung: Brennstoffzelle mit interner Gasregulierung

IPC: H 01 M 8/02

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 6. Juni 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Holß

DaimlerChrysler AG

Dietrich
16.07.2002Brennstoffzelle mit interner Gasregulierung

5 Die Erfindung betrifft Brennstoffzellen, wie sie beispielsweise in modernen Fahrzeugen für Traktionszwecke eingesetzt werden. Typischerweise sind dabei Gruppen von Brennstoffzellen zu sog. Stacks zusammengefaßt.

10 Zur Vereinfachung und Effizienzsteigerung derartiger Brennstoffzellen-Stacks werden häufig unbefeuchtete oder teilbefeuchtete Brennstoffzellen bei hohen Betriebstemperaturen und niedrigen Drücken eingesetzt. Dabei entfällt der apparative Aufwand für Gas/Gas-Befeuchtungseinrichtungen oder es kann
15 auf die - für die Kondensation notwendige - Kühlerfläche verzichtet werden. Durch die hohen Betriebs- und damit Kühlwassertemperaturen der Brennstoffzelle kann der Fahrzeugkühler reduziert und durch den niedrigen Betriebsdruck die Verdichterleistung gesenkt werden.

20 Bei den beschriebenen Betriebsbedingungen entsteht zwangsläufig das Problem der (partiellen) Austrocknung des Elektrolyten der Membrane-Elektroden-Einheit (MEA) - besonders am Kathodeneingang - durch das ungesättigt eintretende Gas.

25 Stand der Technik sind spezielle Anordnungen mehrerer Brennstoffzellen-Stacks, die nacheinander von den Reaktionsstoffen (i.a. Gase) durchströmt werden. Das durch die Zellenreaktion im ersten Stack gebildete Wasser wird so von den Reaktionsstoffen zu den nachgeschalteten Stacks mitgeführt. Eine der-
30 artige Anordnung ist beispielsweise beschrieben in der

EP1009050 wobei das Kathodengas eines ersten (Niedertemperatur-) Stacks mit einem Gasgemisch aus Kathodengas eines zweiten (Hochtemperatur-) Stacks und zudosierter Frischluft versorgt wird. Dadurch ist eine Anpassung des Feuchtegehalts
5 aber nur am Eingang des zweiten Stacks möglich. Da bei dieser Anordnung keine zusätzlichen Möglichkeiten für eine Gasmischung bestehen, kann sowohl die Feuchte als auch der Sauerstoff- bzw. Wasserstoffpartialdruck nicht lokal - also beispielsweise für einzelne Zellen innerhalb eines Stacks - ein-
10 gestellt werden. Dies hat zu Folge, daß der Sauerstoff- bzw. Wasserstoffpartialdruck am Kanaleingang deutlich (häufig 1,5 bis 3 mal) größer ist, als am Ausgang. Inhomogene Reaktionsverteilung und die Gefahr lokaler Überhitzung (sog. Hot Spots) sind die Folge. Außerdem besteht entweder am Anoden-
15 bzw. Kathodeneingang die Gefahr des Austrocknens oder es besteht am Ausgang die Gefahr der Kondensation und damit der Behinderung der Eduktzufuhr an die reaktiven Zonen der MEA.

Ein anderer Vorschlag zur Beeinflussung der Feuchtigkeitsverteilung ist Gegenstand der DE 100 55 253 A1. Bei dieser Anordnung (dargestellt in Figur 1) weist die Verteilerplatte
20 (A) einer Brennstoffzelle einen Kanalbereich (B) mit mehreren parallelen Gaskanälen (C) auf. Diese Gaskanäle (C) verlaufen von einem Portbereich (D), welcher der Gaszuführung dient, zu einem Portbereich (E), über den das Gas abgeführt wird. Zwischen dem Portbereich (D) und den Gaskanälen (C) verlaufen Verbindungskanäle (F). Über diese Verbindungskanäle (F) ist eine lokale Zudosierung von frischem, unverbrauchtem Gas aus dem Portbereich (D) in die Gaskanäle (C) möglich. Durch einen
5 verringerten Querschnitt der Verbindungskanäle (F) gegenüber den Gaskanälen (C) wird der Volumenstrom des frischen Gasstroms derart dosiert, dass die vorhandene lokale Feuchtigkeit im Gaskanal (C) ausreicht, ein Austrocknen der MEA zu verhindern. Da die Verbindungskanäle (F) mit einem gemeinsamen Zuleitungsport (D) verbunden sind, betrifft eine Beeinflussung der Gaszusammensetzung stets die gesamte Zelle.
30
35

Die vorliegende Erfindung geht aus von dieser Anordnung als nächstliegendem Stand der Technik. Ihr liegt die Aufgabe zugrunde, eine Brennstoffzelle zu entwickeln, bei der eine Beeinflussung der Gaszusammensetzung in verschiedenen Bereichen einer Zelle individuell bewirkt werden kann.

Diese Aufgabe wird bei einer Brennstoffzelle mit den Merkmalen des Oberbegriffs des Anspruchs 1 gelöst durch die kennzeichnenden Merkmale des Anspruchs 1. Weitere Details vorteilhafter Ausführungsformen sind Gegenstand der Unteransprüche.

Die beschriebenen Probleme werden erfindungsgemäß mit Hilfe einer vorteilhaften Strömungsführung über mehrere Felder innerhalb einer Brennstoffzelle gelöst. Am Kathoden- bzw. Anodeneingang wird dabei ein verhältnismäßig geringer und ungesättigter Gasstrom der Zelle zugegeben. Dieser Gasstrom kann im Gegensatz zum Stand der Technik kleiner sein als der auf der gesamten aktiven Zellfläche der Bipolarplatte verbrauchte Gasstrom. Durch die geringe Gasmenge wird der MEA im Eingangsbereich weniger Feuchte entzogen. Außerdem wird der Gasstrom schneller durch die Produktwassererzeugung der Zelle befeuchtet bzw. mit Wasserdampf gesättigt. Um der Zelle nochmals Sauerstoff bzw. Wasserstoff zuzuführen wird nach Durchlaufen des ersten Feldes der Gasverteilerstruktur das teilweise abgereicherte Anoden- bzw. Kathodengas in einen Port außerhalb der aktiven Zellfläche geführt, dort definiert mit Frischgas gemischt und anschließend in ein weiteres Feld der Anode bzw. Kathode weitergeleitet. Die Gasmischung erfolgt vorteilhafterweise getrennt zwischen Anoden- und Kathodengasstrom und kann mehrfach entlang der Gaskanäle einer Bipolarplatte angewendet werden. Dadurch kann der Feuchtegehalt der Kathoden- bzw. Anodengase lokal eingestellt und optimiert werden.

Die Erfindung wird im folgenden anhand eines einfachen Ausführungsbeispiels unter Verwendung der Bezugszeichen der Figur 2 näher beschrieben.

- 5 Figur 2 zeigt eine erfindungsgemäße Flowfield-Struktur einer Zelle mit zwei Feldern und zugehöriger Anordnung der Ports für Ein- und Auslaß der Reaktionsstoffe und des Kühlmediums.

Unter Reaktionsstoffen werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung alle an der elektrochemischen Reaktion beteiligten
10 Stoffe verstanden, also sowohl Edukte, wie z.B. H_2 und O_2 , als auch Produkte, wie z.B. H_2O , sowie Gemische daraus.

Die aktive Zellfläche (Bipolarplatte) ist hier - als einfachste Variante - in nur zwei Felder (1, 2) unterteilt, wobei in
15 jedem Feld mindestens eine anoden- und kathodenseitige Gasverteilerstruktur (nicht dargestellt) vorliegt. Durch einen Eingangsport (4a) tritt das frische Kathodengas in das erste Feld (1) ein, wird dort durch den stattfindenden Brennstoffzellenprozeß teilweise abgereichert und wird in den Ausgangs-
20 port (4b) des Feldes 1 geleitet. Entweder wird es dort oder im anschließenden Eingangsport (6a) des folgenden Feldes mit Frischgas über einen regelbaren Einlaßport (9) gemischt. Es ist auch möglich die beiden letztgenannten Ports (4b, 6a) zusammenzulegen oder die Frischgaszufuhr in einem separaten Raum durchzuführen. Das entstandene Gasgemisch aus abgereichertem Gas des vorhergehenden Feldes und dem Frischgas tritt dann in die Kanalstruktur des nachfolgenden Feldes (2) ein, wird dort durch den stattfindenden Brennstoffzellenprozeß
30 teilweise abgereichert und wird in den Ausgangs- port (6b) des Feldes (2) geleitet. Entweder verläßt daraufhin das Kathodengas den Stack oder es findet wiederum eine Frischgasanreicherung in oben beschriebener Weise statt für nachgeschaltete Felder, da prinzipiell kathodenseitig mehrere Felder möglich
35 sind (nicht dargestellt).

Die Gasversorgung der Anode kann analog zu der beschriebenen Strömungsführung und Gasmischung der Kathodenseite erfolgen:

Durch einen Eingangsport (3a) tritt das frische Anodengas in
5 das erste Feld (1) ein, wird dort durch den stattfindenden
Brennstoffzellenprozeß teilweise abgereichert und wird in den
Ausgangsport (3b) des Feldes (1) geleitet. Entweder wird es
dort oder im anschließenden Eingangsport (5a) des folgenden
Feldes (2) mit Frischgas über einen regelbaren Einlaßport
10 (10) gemischt. Es ist auch möglich die beiden letztgenannten
Ports (3b, 5a) zusammenzulegen oder die Frischgaszufuhr in
einem separaten Raum durchzuführen. Das entstandene Gasge-
misch aus abgereichertem Gas des vorhergehenden Feldes (1)
und dem Frischgas tritt dann in die Kanalstruktur des nach-
15 folgenden Feldes (2) ein, wird dort durch den stattfindenden
Brennstoffzellenprozeß wiederum teilweise abgereichert und
wird in den Ausgangsport (5b) des Feldes (2) geleitet. Entwe-
der verläßt daraufhin das Anodengas den Stack oder es findet
wiederum eine Frischgasanreicherung in oben beschriebener
20 Weise für nachgeschaltete Felder statt. Es sind somit auch
anodenseitig mehrere Felder denkbar.

Bei Bedarf kann die Anode und/oder Kathode des Felds 2 oder
5 anderer Felder ausschließlich mit unverbrauchtem Gas direkt
versorgt werden.

Darüber hinaus können die Gasströme der einzelnen Felder auch
dahingehend kombiniert werden, daß die austretenden Kathoden-
oder Anodengasströme mehrerer Felder mit oder ohne Frisch-
30 gasanreicherung vollständig oder teilweise in weitere Felder
geleitet werden. Dadurch können beispielsweise Felder auf
niedrigerem Temperaturniveau mit ihrem austretenden feuchten
Gasstrom Felder versorgen, die auf höherem Temperaturniveau
liegen und damit größerer Austrocknungsgefahr ausgesetzt
35 sind.

Bezüglich der Kühlmedienführung sieht Figur 1 lediglich einen Ausgangs- (8) und einen Eingangsport (7) für alle Felder einer Zelle vor. Um die Temperatur der einzelnen Felder genauer zu steuern, können aber auch Felder mit einem extra Ein- und Ausgangsports für das Kühlmedium versorgt werden (nicht dargestellt). Dabei können analog zur Anode und Kathode die ein- und austretenden Kühlmedienströme der einzelnen Felder miteinander kombiniert werden. Es können analog zu Anode und Kathode Kühlmedienströme bestimmter Felder entweder zusammengeführt oder geteilt und anschließend ganz oder teilweise in ein weiteres Feld eingeleitet werden.

Sinnvoll ist beispielsweise der Betrieb zweier Felder mit separaten Kühlmedienports, um dort die Zelle auf niedrigem Temperaturniveau zu halten. An diesen Stellen wäre dann ein unbefeuchteter oder wenig befeuchteter Betrieb der Zelle möglich. In einem dritten Feld würde dann das austretende und schon warme Kühlmedium und der austretende Kathodengasstrom der beiden kälteren Felder verwendet. Dies hat den Vorteil, daß im dritten Feld trotz höhere Zelltemperatur durch das teilweise abgereicherte aber schon befeuchtete Kathodengas der vorgeschalteten Felder die Austrocknungsgefahr verringert wird. Das letztlich aus Feld drei austretende Kühlmedium ist dann deutlich heißer als wenn alle drei Felder mit einem unabhängigen Kühlmedienstrom versorgt werden würden. Durch die höhere Kühlmedientemperatur verringert sich dann die Größe des Fahrzeugkühlers bei gleicher übertragener Wärmeleistung.

Die schematisch dargestellt Kanalstrukturen zwischen den Ein- und Ausgangsports stellen nur eine Möglichkeit der Kanalstrukturgestaltung dar. Grundsätzlich sind serpentinenförmige, parallele, verzweigte oder/und genoppte Strukturen denkbar.

Durch die erfindungsgemäße Aufteilung der Zelle in mehrere Felder kann die Feuchte und der Sauerstoff- bzw. Wasserstoffgehalt der Kathoden- und Anodengase über die gesamte Zellflä-

che gleichmäßig verteilt werden. Damit kann ein Austrocknen vermindert bzw. beseitigt werden. Zusätzlich ist durch gezielte Gasbeimischung auch eine Beeinflussung der Reaktionsverteilung in der Zelle möglich, so dass eine Entstehung von

5 lokalen Hot Spots weitgehend vermieden werden kann. In einer erweiterten Ausführung der Erfindung sind dazu die verschiedenen Felder jeweils mit Temperatursensoren ausgestattet. Damit kann die jeweilige Gaszusammensetzung und/oder der Kühlmittelfluß in Abhängigkeit von der jeweiligen Feldtemperatur

10 auf die optimalen Betriebswerte eingestellt werden.

15

20

DaimlerChrysler AG

Dietrich
16.07.2002Patentansprüche

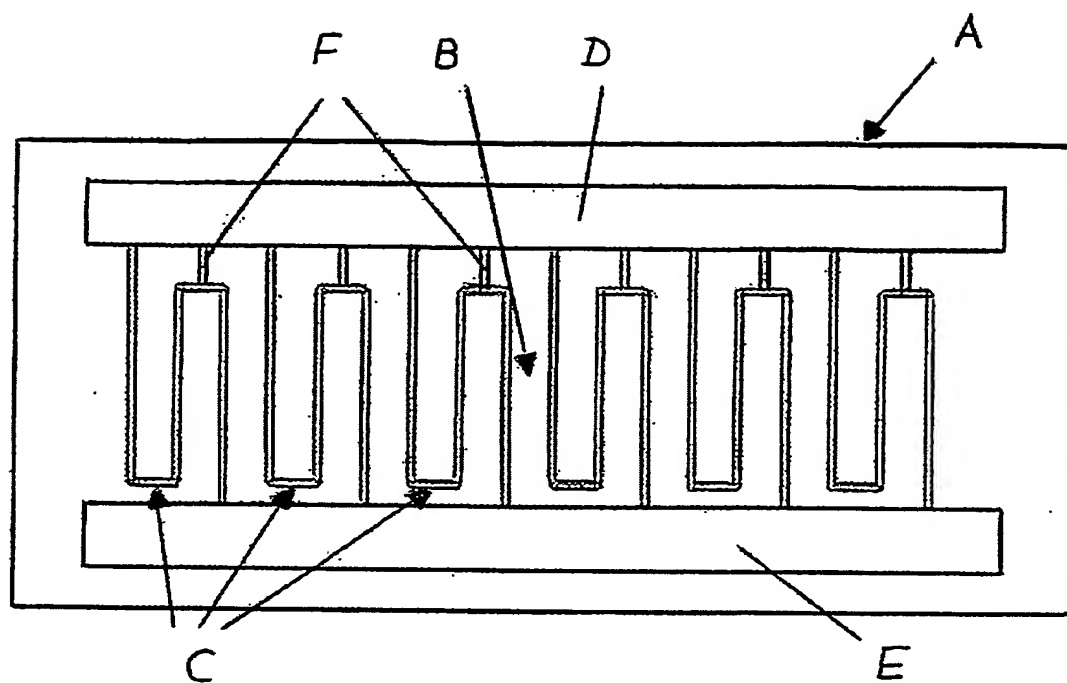
- 5 1. Brennstoffzelle mit einer Membran-Elektroden-Anordnung (MEA), anoden- und kathodenseitigen Bipolarplatten mit Führungskanälen für Reaktionsstoffe sowie Führungskanalstrukturen für ein Kühlmedium,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
10 dass die Verteilerstruktur der Führungskanäle (Flowfield) für die Reaktionsstoffe der Anode oder/und Kathode in mindestens zwei Felder (1, 2) aufgeteilt ist, wobei jedes Feld (1, 2) Eingangs- (3a, 4a; 5a, 6a) und Ausgangsports (3b, 4b; 5b, 6b) für die Reaktionsstoffe aufweist.
- 15 2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass mindestens ein Ausgangsport (3b, 4b) eines Feldes (1) mit einem Eingangsport (5a, 6a) eines anderen Feldes
20 (2) verbunden ist.
3. Brennstoffzelle nach Anspruch 2,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
25 dass im Bereich der Verbindung von Ausgangsport (3b, 4b) des einen Feldes (1) und Eingangsport (5a, 6a) des anderen Feldes (2) eine Zuleitung (9, 10) zur Einleitung von Betriebsstoffen, bevorzugt von Reaktionsstoffen, vorhanden ist.

4. Brennstoffzelle nach Anspruch 1, 2 oder 3,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass mindestens zwei Felder (1, 2) separate Ein-
und Ausgangsports für das Kühlmedium aufweisen.
- 5
5. Brennstoffzelle nach Anspruch 4,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass Mittel vorhanden sind, über die der Fluß und/oder die
Beschaffenheit des Kühlmediums für mindestens zwei Felder
10 (1, 2) separat einstellbar ist.
6. Brennstoffzelle nach Anspruch 4 oder 5,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass mindestens ein Kühlmedium-Ausgangsport eines Feldes
mit einem Kühlmedium-Eingangsport eines anderen Feldes
15 verbunden ist.
7. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 bis 6,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
20 dass Mittel vorhanden sind, über die der Fluß und/oder die
Zusammensetzung der Reaktionstoffe für mindestens zwei
Felder (1, 2) separat einstellbar ist.
8. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 bis 7,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
5 dass wenigstens eines der Felder, bevorzugt jedes der Fel-
der, einen Temperaturfühler aufweist.
9. Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle, die die
30 Merkmale eines der Ansprüche 1 bis 8 aufweist,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t ,
dass der aus dem Ausgangsport (4b) der Kathodenstruktur
eines oder mehrerer Felder (1) austretende teilverbrauchte
Reaktionsstoff mit frischem Reaktionsstoff gemischt und
35 der Kathodenstruktur eines oder mehrerer anderer Felder
(2) über entsprechende Eingangsports (6a) zugeführt wird.

10. Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle, die die Merkmale eines der Ansprüche 1 bis 8 aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass der aus dem Ausgangsport (3b) der Anodenstruktur eines oder mehrerer Felder austretende teilverbrauchte Reaktionsstoff mit frischem Reaktionsstoff gemischt und der Anodenstruktur eines oder mehrerer anderer Felder (2) über entsprechende Eingangsports (5a) zugeführt wird.
11. Verfahren zum Betreiben einer Brennstoffzelle, die die Merkmale eines der Ansprüche 4, 5 oder 6 aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass das aus einem oder mehreren Feldern austretende Kühlmedium mit frischem Kühlmedium gemischt und über entsprechende Kühlmedium-Eingangsports einem oder mehreren anderen Feldern zugeführt wird.
12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens zwei Felder (1, 2) mit unterschiedlichen Kühlmedien (z.B. Luft, Wasser) betrieben werden.
- 13) Verfahren nach Anspruch 11 oder 12, dadurch gekennzeichnet, dass für mindestens zwei Felder (1, 2) Kühlmedien mit unterschiedlicher Temperatur und/oder Strömungsgeschwindigkeit verwendet werden.
14. Verfahren nach einem der Ansprüche 9 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass für mindestens zwei Felder (1, 2) Anoden- und/oder Kathoden-Reaktionsstoffe mit unterschiedlichen Eigenschaften (z.B. Zusammensetzung, Massestrom) verwendet werden.

15. Verfahren nach Anspruch 13 oder 14,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Temperatur jedes Feldes (1, 2) gemessen und zur
Steuerung der Brennstoffzelle durch Veränderung von Zu-
sammensetzung und/oder Fluß der Reaktionsstoffe, bzw. des
Kühlmediums verwendet wird.

16. Verfahren zum Betreiben von mindestens zwei Stacks aus
Brennstoffzellen, die die Merkmale eines der Ansprüche 1
bis 8 aufweisen,
dadurch gekennzeichnet,
dass Reaktionsstoffe und/oder Kühlmedium nacheinander
über Felder (1, 2) von Zellen verschiedener Stacks gelei-
tet werden.

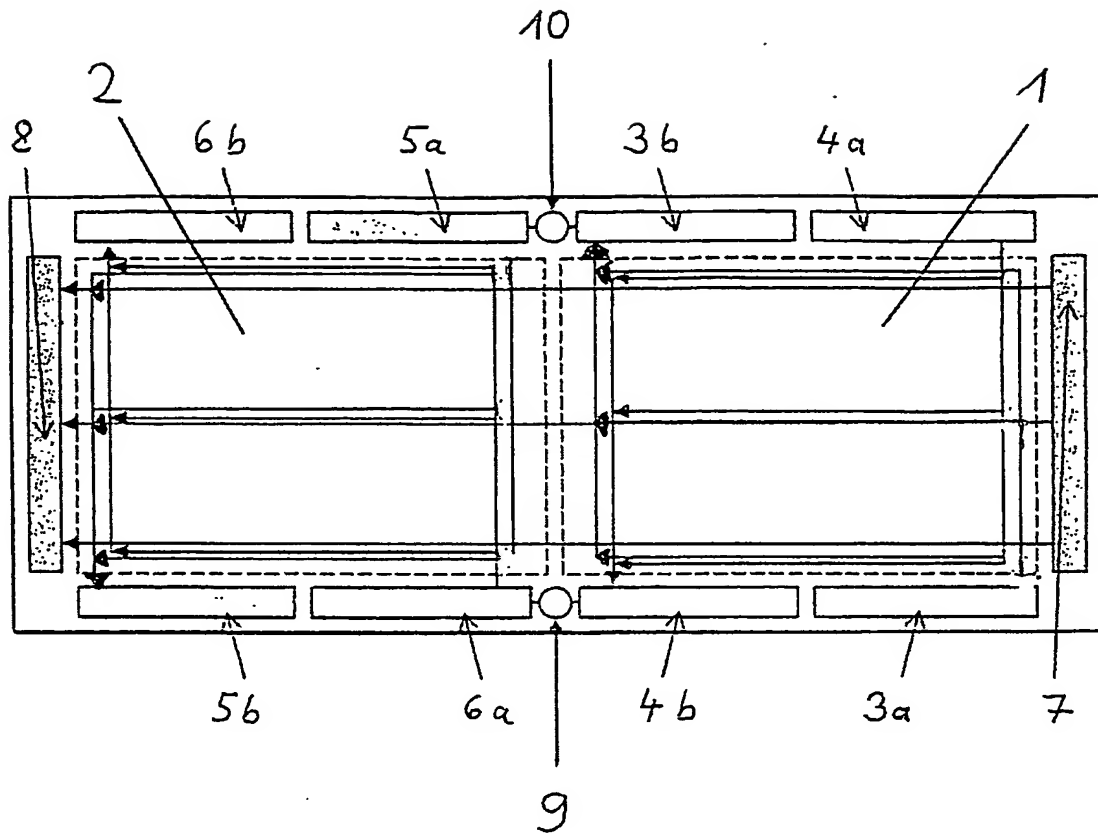


Figur 1

5

10

15



Figur 2

DaimlerChrysler AG

Dietrich
16.07.2002ZusammenfassungBrennstoffzelle mit interner Gasregulierung

Die aktive Zellfläche (Bipolarplatte) einer Brennstoffzelle ist in Felder (1, 2) unterteilt, wobei in jedem Feld mindestens eine anoden- und kathodenseitige Gasverteilerstruktur vorliegt. Durch einen Eingangsport (3a, 4a) tritt das frische Anodengas bzw. Kathodengas in ein erstes Feld (1) ein, wird dort durch den stattfindenden Brennstoffzellenprozeß teilweise abgereichert und wird in den Ausgangsport (3b, 4b) des Feldes (1) geleitet. Das abgereicherte Gas wird - u.U. nach Zumischung von Frischgas - in die Kanalstruktur des nachfolgenden Feldes (2) eingeleitet und wird dort durch den stattfindenden Brennstoffzellenprozeß wieder teilweise abgereichert. Eine erneute Frischgasanreicherung in oben beschriebener Weise kann dann wieder für nachgeschaltete Felder individuell erfolgen.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.